

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESSENS

## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT (Artikel 36 und Regel 70 PCT)

REC'D 10 FEB 2005

WIPO PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000054059	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/12558	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 11.11.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 13.11.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07D201/16		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.



2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 2 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Bescheids
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags  29.04.2004	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  09.02.2005
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde   Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  Schuemacher, A Tel. +49 89 2399-7818 

**I. Grundlage des Berichts**

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

**Beschreibung, Seiten**

1-18 in der ursprünglich eingereichten Fassung

**Ansprüche, Nr.**

1-14 in der ursprünglich eingereichten Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
  - ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
  - ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).
3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:
- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
  - ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
  - ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
  - ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
  - ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
  - ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.
4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
- ☐ Beschreibung,      Seiten:
  - ☐ Ansprüche,      Nr.:
  - ☐ Zeichnungen,      Blatt:
5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

*(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)*

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER  
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen **PCT/EP 03/12558**

---

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

**V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

- |                                |   |
|--------------------------------|---|
| 1. Feststellung                |   |
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche 1-14<br>Nein: Ansprüche   |
| Erfinderische Tätigkeit (IS)   | Ja: Ansprüche 1-14<br>Nein: Ansprüche   |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-14<br>Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen:

**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

Es wird auf die folgende Dokumente verwiesen:

- D1: WO 01/90065 A (RHODIA) 29. November 2001 (2001-11-29) D1:
- D2: US-A-5 693 793 (FISCHER ROLF ET AL) 2. Dezember 1997
- D3: WO 01/83442 A (BASF AG (DE)) 8. November 2001 in der Anmeldung erwähnt
- D4: WO 01/83441 A (BASF AG (DE)) 8. November 2001
- D5: WO 01/94308 A (BASF AG (DE)) 13. Dezember 2001
- D6: US-A-5 495 016 (ACHHAMMER GUENTHER ET AL) 27. Februar 1996

**1. Neuheit, Artikel 33(2) PCT:**

Der Gegenstand der vorliegenden Anmeldung erfüllt die Erfordernisse des Artikels 33(2) PCT, da er gegenüber den Dokumenten D1-D6 neu ist :

Es handelt sich hier um das Verfahren zur Reinigung von Caprolactam, das aus einer Mischung von 6-Aminocapronitril und Wasser in Gegenwart eines Katalysators erhalten wurde und anschließend nach Abtrennung von Ammoniak und Wasser destillativ gereinigt wird. Das Verfahren ist gekennzeichnet dadurch, daß während der destillativen Reinigung eine anorganische Säure zum Rohcaprolactam (Gemisch von Caprolactam, Leichtsieder und Hochsieder), zugegeben wird und auch dadurch, daß der erste Teilstrom, der aus der ersten Destillationsvorrichtung K1 in eine zweite K2 und anschließend in eine dritte Destillationsvorrichtung K3 zugeführt wird.

Beispiel 2 in D1 unterscheidet sich vom beanspruchten Verfahren dadurch, daß nach der ersten Destillationsvorrichtung Natron Lauge zugegeben wird.

In Beispiel 2 von D2, werden nur die Hochsieder mit Phosphorsäure behandelt und anschließend wird das so erhaltene Caprolactam noch durch Hydrierung und Behandlung mit einem Ionentauscher und Natronlauge gereinigt, um das spezifikationsgerechte Caprolactam zu erhalten (siehe Spalte 7, Z.31-41).

In D3-D6 wird keine anorganische Säure zu dem Rohcaprolactam gegeben.

**2. Erfinderische Tätigkeit, Artikel 33 (3) PCT:**

Die technische Aufgabe, die in der vorliegenden Erfindung zu lösen ist, kann darin gesehen werden, ein Verfahren zur Herstellung von Caprolactam in hoher Reinheit auf

**BEST AVAILABLE COPY**

technisch einfache und energiesparende Weise zu entwickeln (Siehe Seite 5, Z.9-11).

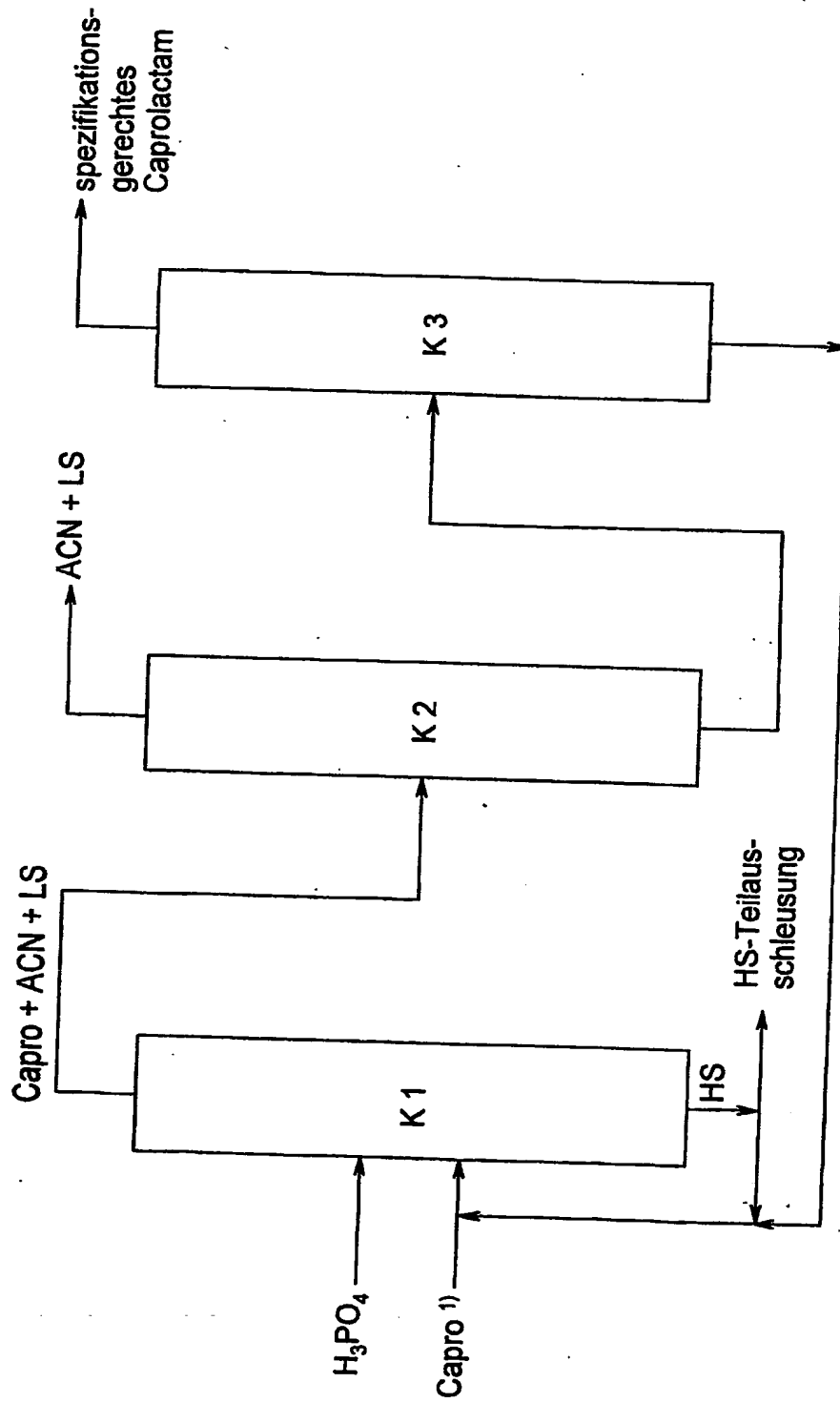
Das Dokument **D2** wird als nächstliegender Stand der Technik gegenüber dem Gegenstand des Anspruchs 1 angesehen. Es offenbart in Beispiel 2, wie der Anmelder in seinem Schreiben vom 19.07.2004 erwähnt, die Umsetzung von Hochsiedern mit Phosphorsäure zu Caprolactam, das aus dem Reaktionsgefäß abdestilliert wird. Diese Hochsieder wurden vorher nach Beispiel 1 bei der Cyclisierung von 6-Aminocapronitril mit Wasser im Gemisch mit dem Caprolactam gewonnen. Dieses Gemisch von Caprolactam mit Hochsieder wurde destillativ getrennt und die Hochsieder wurden dann in Beispiel 2 mit Phosphorsäure zu Caprolactam umgesetzt. Anschließend muß das so erhaltene Caprolactam nochmal gereinigt werden mit dem aus US5496941 beschriebenen Reinigungsverfahren (siehe Spalte 7, Z.31-41: Hydrierung, Reaktion mit einem Ionentauscher und wäßriger Natronlauge), um das spezifikationsgerechte Caprolactam zu erhalten.

Das beanspruchte Verfahren unterscheidet sich dadurch, daß gleich das Gemisch von Caprolactam, Hochsieder und Leichtsieder mit einer anorganischen Säure in einer ersten Destillationsvorrichtung K1 umgesetzt wird. Der erhaltene erste Teilstrom der Destillationsvorrichtung K1 wird dann einer zweiten K2 und dritten Destillationsvorrichtung K3 zugeführt.

Es wurde in keinem Dokument des Standes der Technik erwähnt, daß die Umsetzung mit einer anorganischen Säure gleich mit dem Gemisch Caprolactam, Hochsieder und Leichtsieder durchgeführt werden kann, und daß um das spezifikationsgerechte Caprolactam zu erhalten, die Reinigungsmaßnahmen (wie die Hydrierung, die Reaktion am Ionentauscher und die Umsetzung mit NaOH wäßr.) einfach durch zwei weitere Destillationen ersetzt werden können.

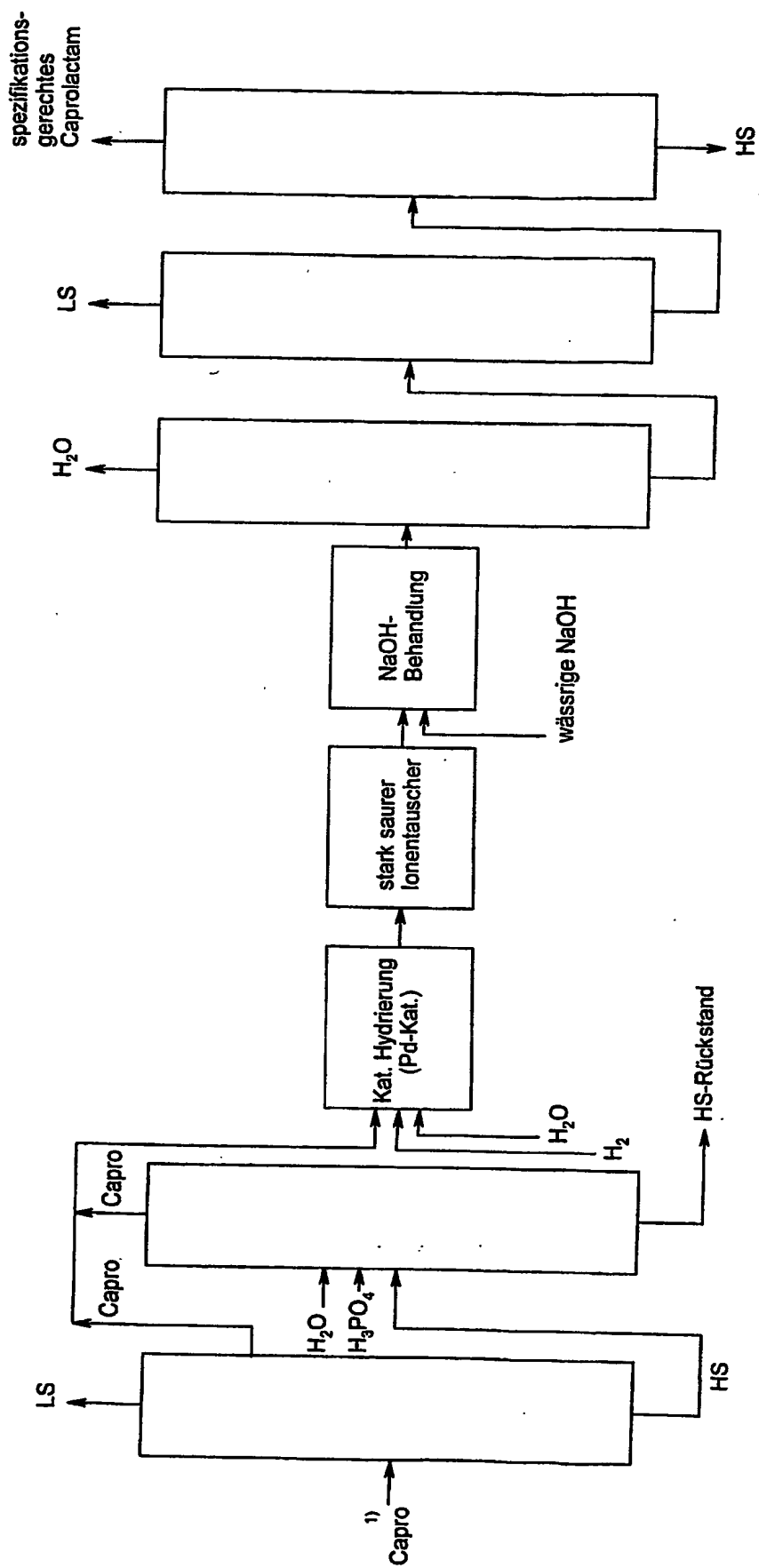
Das beanspruchte Verfahren kann daher als erfinderisch angesehen werden, da es zum spezifikationsgerechten Caprolactam führt (wie auf Seite 17, Z. 10-14 und Tabelle auf Seite 18 der Anmeldung beschrieben), ohne daß das Rohcaprolactam, wie in D2, noch hydriert und mit einem Ionentauscher und Natronlauge behandelt werden muß, um den spezifikationsgerechten Caprolactam zu erhalten.

Das beanspruchte Verfahren erfüllt die Anforderungen des Artikel 33(3) PCT.



1) Gemisch aus Caprolactam, Hochsiedern (HS) und Leichtsiedern (LS), hergestellt durch Entfernung von Wasser und Ammoniak aus dem Cyclisierungsaustrag

Abb. 1 Hauptanspruch aus PF 54.059



<sup>1)</sup> Cyclisierungs-Austrag, aus dem  $\text{NH}_3$ ,  $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$  und  $\text{H}_2\text{O}$  schon abgetrennt wurden

**Abb. 2 Kontin. Durchführung von Beispiel 7, D 2**  
(schematisch; vereinfacht)

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

3 MAY 2005

PCT/EP2003/012558



PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY  
(Chapter II of the Patent Cooperation Treaty)

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference 0000054059	FOR FURTHER ACTION See Form PCT/IPEA/416	
International application No. PCT/EP2003/012558	International filing date (day/month/year) 11 November 2003 (11.11.2003)	Priority date (day/month/year) 13 November 2002 (13.11.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07D 201/16		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This report is the international preliminary examination report, established by this International Preliminary Examining Authority under Article 35 and transmitted to the applicant according to Article 36.
2. This REPORT consists of a total of 5 sheets, including this cover sheet.
3. This report is also accompanied by ANNEXES, comprising:
  - a. ☒ (sent to the applicant and to the International Bureau) a total of 2 sheets, as follows:
    - ☐ sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis of this report and/or sheets containing rectifications authorized by this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions).
    - ☐ sheets which supersede earlier sheets, but which this Authority considers contain an amendment that goes beyond the disclosure in the international application as filed, as indicated in item 4 of Box No. I and the Supplemental Box.
  - b. ☐ (sent to the International Bureau only) a total of (indicate type and number of electronic carrier(s)) \_\_\_\_\_, containing a sequence listing and/or tables related thereto, in computer readable form only, as indicated in the Supplemental Box Relating to Sequence Listing (see Section 802 of the Administrative Instructions).

4. This report contains indications relating to the following items:

- |   |   |
|---|---|
| <input checked="" type="checkbox"/> Box No. I | Basis of the report   |
| <input type="checkbox"/> Box No. II           | Priority  |
| <input type="checkbox"/> Box No. III          | Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability  |
| <input type="checkbox"/> Box No. IV           | Lack of unity of invention  |
| <input checked="" type="checkbox"/> Box No. V | Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement |
| <input type="checkbox"/> Box No. VI           | Certain documents cited   |
| <input type="checkbox"/> Box No. VII          | Certain defects in the international application  |
| <input type="checkbox"/> Box No. VIII         | Certain observations on the international application   |

Date of submission of the demand 29 April 2004 (29.04.2004)	Date of completion of this report 09 February 2005 (09.02.2005)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY

International application No.

PCT/EP2003/012558

## Box No. I Basis of the report

1. With regard to the language, this report is based on the international application in the language in which it was filed, unless otherwise indicated under this item.

- ☐ This report is based on translations from the original language into the following language \_\_\_\_\_, which is language of a translation furnished for the purpose of:
- ☐ international search (under Rules 12.3 and 23.1(b))
  - ☐ publication of the international application (under Rule 12.4)
  - ☐ international preliminary examination (under Rules 55.2 and/or 55.3)

2. With regard to the elements of the international application, this report is based on (replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report):

- ☐ The international application as originally filed/furnished
- ☒ the description:
- pages \_\_\_\_\_ 1-18 \_\_\_\_\_, as originally filed/furnished
- pages\* \_\_\_\_\_ received by this Authority on \_\_\_\_\_
- pages\* \_\_\_\_\_ received by this Authority on \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:
- pages \_\_\_\_\_ 1-14 \_\_\_\_\_, as originally filed/furnished
- pages\* \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement) under Article 19
- pages\* \_\_\_\_\_ received by this Authority on \_\_\_\_\_
- pages\* \_\_\_\_\_ received by this Authority on \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings:
- pages \_\_\_\_\_, as originally filed/furnished
- pages\* \_\_\_\_\_ received by this Authority on \_\_\_\_\_
- pages\* \_\_\_\_\_ received by this Authority on \_\_\_\_\_
- ☐ a sequence listing and/or any related table(s) – see Supplemental Box Relating to Sequence Listing.

3. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/figs \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing (specify): \_\_\_\_\_
- ☐ any table(s) related to sequence listing (specify): \_\_\_\_\_

4. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments annexed to this report and listed below had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/figs \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing (specify): \_\_\_\_\_
- ☐ any table(s) related to sequence listing (specify): \_\_\_\_\_

\* If item 4 applies, some or all of those sheets may be marked "superseded."

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP 03/12558

**V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement****1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-14	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-14	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-14	YES
	Claims		NO

**2. Citations and explanations**

This report makes reference to the following document:

D1: WO 01/90065 A (RHODIA) 29 November 2001 (2001-11-29)

D2: US-A-5 693 793 (FISCHER ROLF ET AL) 2 December 1997

D3: WO 01/83442 A (BASF AG (DE)) 8 November 2001, cited in the application

D4: WO 01/83441 A (BASF AG (DE)) 8 November 2001

D5: WO 01/94308 A (BASF AG (DE)) 13 December 2001

D6: US-A-5 495 016 (ACHHAMMER GUENTHER ET AL) 27 February 1996

**1. Novelty (PCT Article 33(2)):**

The subject matter of the present application meets the requirements of PCT Article 33(2) because it is novel over D1 to D6:

This subject matter relates to a method for purifying caprolactam that has been obtained from a mixture of 6-aminocapronitrile and water in the presence of a catalyst and then purified by distillation after ammonia and water have been removed. The method is characterized in that, during purification by distillation, an inorganic acid is added to the crude caprolactam (mixture of caprolactum,

low boilers and high boilers) and also in that the first partial flow from the first distillation device K1 is fed to a second distillation device K2 and then to a third distillation device K3.

Example 2 in D1 differs from the known method in that sodium hydroxide solution is added downstream of the first distillation device.

In example 2 of D2, only the high boilers are treated with phosphoric acid and the caprolactam thus obtained is then purified by hydration and treatment with an ion exchanger and sodium hydroxide solution in order to obtain caprolactam that meets the specifications (see column 7, lines 31-41).

In D3 to D6, no inorganic acid is added to the crude caprolactam.

## 2. Inventive step (PCT Article 33(3)):

The technical problem to be solved by the present invention can be regarded as that of developing a method of producing caprolactam of high purity in a technically simple and energy-efficient manner (see page 5, lines 9-11).

D2 is regarded as the prior art closest to the subject matter of claim 1. D2 discloses, in example 2, as mentioned by the applicant in the letter of 19 July 2004, the reaction of high boilers with phosphoric acid to form caprolactam, which is distilled off from the reaction vessel. These high boilers were obtained, according to example 1, from the cyclization of 6-aminocarbonitril with water in the mixture with the caprolactam. This mixture of caprolactam with high boilers was separated by distillation and the high boilers were then reacted, in example 2, with phosphoric acid to form caprolactam. The

caprolactam thus obtained must then be purified again by means of the purification method described in US5496941 (see column 7, lines 31-41: hydration, reaction with an ion exchanger and aqueous sodium hydroxide solution) in order to obtain caprolactam that meets the specifications.

The claimed method differs in that the mixture of caprolactam, high boilers and low boilers is reacted directly with an inorganic acid in a first distillation device K1. The resultant first partial flow of distillation device K1 is then guided to a second distillation device K2 and a third distillation device K3.

None of the prior art documents mentions that an inorganic acid can be reacted directly with the mixture of caprolactam, high boilers and low boilers, and that, in order to obtain caprolactam that meets the specifications, the purification measures (such as hydration, the reaction with the ion exchanger and the reaction with NaOH) can simply be replaced by two additional distillation steps.

Hence the claimed method can be regarded as inventive because it leads to caprolactam that meets the specifications (as described on page 17, lines 10-14 and the table on page 18 of the application), without the crude caprolactum then needing to be hydrated and treated with an ion exchanger and sodium hydroxide solution, like in D1, in order to obtain caprolactam that meets the specifications.

The claimed method meets the requirements of PCT Article 33(3).

BEST AVAILABLE COPY